

⑤ Int.CI.

⑥日本分類

G 03 c

103 B 7

C 09 k

103 B 11

C 08 k

13(9) B 31

2525 H 09

25(1) A 25

日本国特許庁

⑦特許出願公告

昭47-28937

⑧特許公報

⑨公告 昭和47年(1972)7月31日

発明の数 1

(全7頁)

1

⑩写真材料の帶電傾向を減ずる方法

⑪特 願 昭42-20561

⑫出 願 昭42(1967)3月30日

優先権出張 ⑬1966年10月4日⑭イギリス
ス国⑮44274/66

⑯発明者 ヨハネス・カメール・ヴァンポッケ

ベルギー国ベルシエン市ベルシエン・ボスラーン4

同 ロデウェーク・フェレ・ド・ケユ

セール

ベルギー国モートゼール・ネーウエレ9

同 ルク・トラド・ベルベーン
ベルギー国ベルシエン市カルメレ

テーン・ストラート102

⑯出願人 ゲヴエルト・アグファ・エヌ・ヴィ

ベルギー国モートゼール・セブテ
ストラート27

代理人 弁理士安達世殷 外1名

発明の詳細な説明

写真材料は静電的に帶電される傾向を有するこ
とは知られている。かかる帶電は写真材料製造の
どの工程でも生ずることができ、特にその製造
工程とは別の工程または切断工程でかかる材料を
再巻き取りするときに生ずる。帶電はまた写真カ
メラ中で巻きもどすときにも生ずる。感光性乳剤
上での静電気の放電は、よく知られている静電マ
ークを発生するか、または塵の吸引の増大を生ぜ
しめるので、この静電帶電はできる限り低下させ
るかまたは除去することが必要である。

本発明者等は写真材料の静電帶電する傾向を低
く低下させ、かつ写真材料の処理後帶電防止性を
保つ新規な方法をここに見出した。

2

本発明により、支持体および少なくとも一つの
感光性ハロゲン化銀乳剤層を含む写真材料の静電
帶電する傾向を低下させるための方法を提供する。
この方法は支持体の裏側にA疎水性 α ・ β -エチレン
系不飽和单量体および α ・ β -エチレン系不飽和モノ
ーまたはシカルボン酸またはその誘導体の
部分中和共重合体とB上記Aの共重合体と相溶性
を有する疎水性重合体の混合物よりなる第一層を
付与し、この層は支持体に影響を与える水混和性

10 有機溶媒から付与し、次いでハロゲン化銀乳剤層
の写真的性質を妨害することのない非粘性疎水性
重合体の保護層を付与することからなる。

静電防止層および疎水性保護層の組み合わせは
セルローズトリニアセテート、セルローズプロピオ
15 ネート、セルローズブチレートの如きセルローズ
エステル支持体、およびセルローズアセテート一
ブチレートの如きセルローズ混合エステルを基材
として作った写真フィルムにすぐれた帶電防止性
を与える。以下の説明は特にセルローズエステル

20 支持体を有する写真フィルムについて行なうが、
静電防止層と疎水性保護層の組み合わせは他の写
真支持体、例えばセルローズ化合物例えばニトロ
セルローズ、セルローズエステルまたはエーテル、
場合によつては他の疎水性重合体との混合物で被
覆層を設けた写真用紙の場合に付与しても成功で
きる。

セルローズエステル支持体に隣接した第一層を
形成する混合物は疎水性单量体単位および親水性
单量体単位より形成した部分中和した共重合体を
30 含む。疎水性単位は有機溶媒に対する共重合体の
感度を増強する能力を有する单量体から誘導する。
上述した観点より、共重合体中に疎水性 α ・ β -エチレン
系不飽和单量体例えばステレン、およびその誘導体、
35 例えばニトロステレンおよびビニルトルエン、ビニールアセテート、ビニールアルキルエーテル、アルキルアクリレートおよびアルキルメタクリレートを含有することができる。親

水性単位は α ・ β -エチレン系不飽和モノーまたはジカルボン酸およびその誘導体、例えばアクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、マレイン酸、フマール酸、イタコン酸およびシトラコン酸、およびその半エステルおよび半アミドから得られる。⁵共重合体は、pH約7に上昇させるため共重合体に充分量のアルカリ金属水酸化物を加えるという意味で部分的に中和した形で付与する。

共重合体の分子量は、ステレンとマレイン酸の共重合体の場合10000乃至350000の間で変化した分子量で同様な結果が得られることから、広い範囲で変えることができる。

上記共重合体はこれと相溶性を有する疎水性重合体例えばセルローズジアセテート、セルローズプロピオネート、セルローズブチレート、セルローズアセテート-ブチレート、ヒドロキシエチルセルローズアセテート、フェノール変性クマロン-1イソデン樹脂、ポリ(メチルメタクリレート)およびステレンとアリルアルコールの共重合体と混合する。

セルローズエステル支持体に隣接する層のための結合剤として見做しうる疎水性共重合体は、後述する如くセルローズエステル支持体の面に影響を与えることのできる水混和性有機溶媒に可溶性でなければならない。アセトン、ブタノン、テトラヒドロフランおよびそれらの場合によつては水またはメタノールとの混合物の如き溶媒が本発明方法において非常に好適である。この第一層に非粘性疎水性重合体の保護層を付与する、この層は第一層に強く付着し、感光性ハロゲン化銀乳剤層の写真的性質を妨害せず、写真装置での操作中磨耗に対し抵抗性を有するものとする。事実として上述した要件を満足するものならば何れの疎水性重合体も使用しうる。特に有用なものを例示すると、セルローズジアセテート、セルローズトリアセテートおよびビニリデンクロライドおよびアクリロニトリルの共重合体の如き重合体の使用である。写真装置中でのこの層の摩擦を最小にするため、ワックスの如き摩擦低下剤をこの層組成物に加えることもできる。

写真フィルム材料は主としてセルローズエステル支持体、下塗り層および感光性ハロゲン化銀乳剤層よりなつてゐる。下塗り層の目的は疎水性支持体に親水性感光性層を強く付着させることにあ

る。下塗り層は常に多かれ少なかれ支持体面に影響を与える溶媒中の溶液より付与される。

ここに影響を与えるとの語はこれらの溶媒が表面的にセルローズエステルフィルムを侵攻し、それによつて支持体面の分子構造を変性することを示す。その結果として、乾燥後、その面に写真材料をカールさせる傾向を有する新しい抗張力が生ずる。

もしここで支持体の裏側に他の層を付与すると10き、溶媒による処理の影響の下で抗張力は補償される。これは支持体の前側に下塗り層および感光性乳剤層を付与することにより生ずる。これはセルローズエステル支持体の面を侵害する溶媒を第一裏側層のための溶媒として使用することによつて達成しうる。

本発明の方法によれば部分的に中和した共重合体とかかる重合体のための結合剤として作用する疎水性重合体の混合物からなる第一層を付与する。従つて混合物は一定量の疎水性重合体例えばセルローズジアセテートを含有しなければならない。実際に疎水性重合体は層の強度を増強し、これによつてその耐搔傷性は増強され、巻き戻し中写真装置上にこの層からの塵が付着するのをなくする。

アルカリ金属水酸化物によつてpHを約4に中和した後、疎水性単量体と α ・ β -エチレン系不飽和モノーまたはジカルボン酸の共重合体は非常に有効な帯電防止性を作る、この性質は疎水性結合剤と混合した後でさえもなお充分である。通常帯電防止共重合体は層に加工するため疎水性結合剤の等量または2倍量と混合する。帯電防止性共重合体の水性溶液は有機溶媒例えばアルコールおよびケトンで稀釈することができる、これによつて疎水性重合体の溶液と混合することが可能になる。

35 結合剤としてのセルローズジアセテートと混合したステレンとマレイン酸の部分的に中和した共重合体の場合、50ccの水、150ccのメタノール、800ccのアセトン、5gのセルローズジアセテートおよび2.5g～5gの共重合体を混合することによつて第一層のための良好な被覆組成物が得られる。

保護層の主目的は材料の耐搔傷性を増大させること、および特に写真浴中で処理後でさえも写真材料の良好な静電性を保つことにあり、かくする

5

ことによつて塵の吸引は処理後でさえも非常に減ずる。処理された材料の帶電防止性について興味が少ないとときは、場合によつては保護層をはぶくこともできる。かかる場合には、既知の帶電防止層を用いた場合の如く第一層の静電性は処理によつて失われる。しかしながら本発明によれば、疎水性重合体の第2層は写真浴中での帶電防止性の消失を防ぎ、その結果として仕上げた写真像は塵を吸引することが非常に少なくなる。

既知の方法では、帶電防止性は吸湿性生成物を使用することによつて殆んどの場合得られる、しかしながら、雰囲気の相対湿度の値が高くなると粘性な層を形成する欠点を有する。本発明方法においては実際の帶電防止層は疎水性層で被われるからこの欠点はなくなる。

本発明による帶電防止層および保護層の組み合わせは、感光性ハロゲン化銀乳剤層を被覆する前に写真支持体に通常付与される。実際この組み合わせは静電的に帶電されるべき材料の感受性を低下させる。これによつて全ての別の層の付与中、および製造と処理の別の工程で巻き戻すとき生ずる数多の欠点は非常に減少せしめられる。これと同時にこれらの操作中写真材料上への塵の付着は著しく減ぜしめられる。

写真材料の帶電防止性の測定は1955年10月のDIN53482号に記載した方法により表面抵抗を測定することによつて行なつた。各実施例における数値は写真材料の裏側、即ち本発明による帶電防止層と保護層の組み合わせの側で測定して得たものである。

以下に実施例をあげて説明する。

実施例 1

既知の下塗り層で前側を被覆したセルローストリニアセテートのフィルム支持体の裏側を、下記溶液から4.5m²/lの割合で帶電防止層で被覆した。

苛性ソーダでpH7に中和した約

3000の分子量のコポリ(ステレン/マレイン酸)(50:50モル%)の

20%水溶液

水

メタノール

アセトン

アセチル基の置換度2.5のセルローズ

シアセテートの5%アセトン溶液

6

70℃で5分間乾燥した後、それに下記溶液より5.5m²/lの割合で保護層を付与した。

アセチル基の置換度2.5のセルローズ 80cc

シアセテートの5%アセトン溶液

アセトン 770cc

メタノール 75cc

ブタノール 75cc

乾燥後、高感度ゼラチノハロゲン化銀乳剤層を下塗り層上に付与した。

10 この写真材料の裏側の表面抵抗を、通常の写真浴中で処理する前および後にそれぞれ相対湿度30%および60%で材料を調湿して測定した。

処理前: 30% R.H. $1.2 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

60% R.H. $0.014 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

15 処理後: 30% R.H. $3.7 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

60% R.H. $0.046 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

これと同じ方法により、帶電防止層および保護層を有しないこと以外は同じである写真材料の裏側の表面抵抗を測定したら $5.0 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

20 10cm²以上の値が得られた。

実施例 2

実施例1を繰り返した、しかし本例では帶電防止層は下記溶液より4.0m²/lの割合で形成させた。

25 苛性ソーダでpH約7に中和した分子

量約150000のコポリ(ステレン/マレイン酸)(50:50モル%)の

20%水溶液

水 37.5cc

メタノール 150cc

アセトン中の実施例1のセルローズジ

アセテートの5%溶液 50cc

乾燥後実施例1と同じ保護層を帶電防止層に付

与し、支持体の前面に写真ハロゲン化銀乳剤層を付与した。表面抵抗の値は次のとおりであった。

処理前: 30% R.H. $0.85 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

60% R.H. $0.01 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

処理後: 30% R.H. $4 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

60% R.H. $0.05 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

40 これらの値は、感光性ハロゲン化銀乳剤層を有しないこと以外は同じである材料について表面抵抗を測定したとき殆んど同じであった。

実施例 3

アルチル基の置換度2、ブチリル基の置換度約

7

0.75のセルローズアセテート一ブチレートのフィルム支持体の一側に下塗り層を設けた。次いでこの支持体の他側に下記溶液より40m³/lの割合で帯電防止層を被覆した。

苛性ソーダで pH 7 に中和した分子量 約 1 0 0 0 0 0 のコポリ (スチレン/ マレイン酸) (50 : 50 モル%) の 20 % 水溶液	25cc
水	25cc
メタノール	300cc
アセトン	550cc
実施例 1 のセルローズジアセテートの 5 % 水溶液	100cc
乾燥後、下記溶液より保護層を $4.8 \text{ m}^3/\ell$ の割 合でそれに付与した	

アセトン中の実施例1のセルローズジ アセテートの5%水溶液

アセトン	805cc
ブタノール	75cc
次いで高感度ゼラチノハロゲン化銀乳剤層を下	
塗り層に付与した。	
下記の表面抵抗値が測定された。	
処理前：	$30\% \text{ P.H. } 0.06 \times 10^{-10} \Omega / 10\text{cm}$
	$60\% \text{ R.H. } 0.002 \times 10^{-10} \Omega / 10\text{cm}$
処理後：	$30\% \text{ R.H. } 0.21 \times 10^{-10} \Omega / 10\text{cm}$
	$60\% \text{ R.H. } 0.008 \times 10^{-10} \Omega / 10\text{cm}$

実施例 4

実施例2において保護層として下記溶液より
4.6m³/lの割合で被覆を付与した以外は実施例
2を繰り返した。

ブタノン中のコポリ(ビニリデンクロライド/アクリロニトル)(80/20) 50cc
の10%溶液
ブタノン 950cc
アセトン中の上記共重合体の20%溶液は24
で6.0センチポアズの粘度を有していた。

仕上げた写真材料は下記表面抵抗値を有している。

處理前：	30% R.H.	$0.9 \times 10^{-10} \Omega / 10\text{cm}$
	60% R.H.	$0.016 \times 10^{-10} \Omega / 10\text{cm}$
處理後：	30% R.H.	$2.1 \times 10^{-10} \Omega / 10\text{cm}$
	60% R.H.	$0.04 \times 10^{-10} \Omega / 10\text{cm}$

実施例 5

セルローズトリアセテート支持体に下塗り層を

8

付与した。次いで支持体の他側を下記溶液から
 $4.4 \text{ m}^2/\ell$ の割合で帶電防止層で被覆した。

苛性ソーダで pH 7 に中和した分子量 約 45000 のコポリ (スチレン/マ レイン酸) (50:50 モル%) の 20 % 水溶液	12.5cc
水	12.5cc
メタノール	175cc
アセトン	700cc
アセチル基とヒドロキシエチル基の 置換度がそれぞれ 2.8 および 0.92 であるヒドロキシエチルセルローズ アセテートのアセトン中の 5% 溶液 70℃で 5 分間乾燥後、下記溶液から 4.8 ml / l の割合で保護層を付与した。	100cc

アセトン中の上記ヒドロキシエチルセルローズアセテートの5%溶液	100cc
アセトン	750cc
メタノール	75cc
ブタノール	75cc

実施例 6

セルローズトリアセテート支持体に下記溶液か
30 ら 4.4 m^3/l の割合で帶電防止層を付与した。

実施例 3 の共重合体の 20 % 水溶液	12.5cc
水	37.5cc
メタノール	150cc
アセトン	700cc
35 アセトン中のコポリ(ステレン/アリルアルコール)(70/30)の5%溶液	100cc

70℃で5分間乾燥した後、実施例4の保護層を付与した。下塗層上に感光性ハロゲン化銀乳剤40層を被覆した後、得られた写真材料をその表面抵抗について測定した。下記の値を得た。

$$\text{処理後: } 30\% \text{ R H } 3.4 \times 10^{-10} \Omega / 10\text{cm}$$

9

60% R.H. $0.04 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

実施例 7

下塗り層を前側に設けたセルローズトリアセテートフィルムの裏側に下記溶液より $4.1 \text{m}^3 / \text{l}$ の割合で帯電防止層を設けた。

5

実施例 1 の共重合体の 20% 水性溶液	17.5cc
水	32.5cc
メタノール	150cc
アセトン	750cc
アセトン中のフェノール変性クマロン	50cc

10

インデン樹脂の 10% 溶液
 70°C で 5 分間乾燥した後、これに下記溶液より $5.2 \text{m}^3 / \text{l}$ の割合で被覆層を付与した。

メチレンクロライドとエタノールの混合物 (9:1) 中のセルローズトリア	100cc
セテートの 5% 溶液	15
メチレンクロライド	810cc
エタノール	90cc

次いでこの材料に感光性ゼラチノハロゲン化銀乳剤層を付与した。

20

表面抵抗を測定して次の値を得た。

処理前:	30% R.H. $0.8 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R.H. $0.055 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
処理後:	30% R.H. $3.10 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R.H. $0.055 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

25

感光性ゼラチノハロゲン化銀乳剤層がない時でさえも約同じ表面抵抗値が測定された。

実施例 8

実施例 1 の写真フィルムの一定の長さを切断し通常の映画用フィルムの製造で行なわれるよう穴をあけた。かくして得られたフィルムの約 6~7 m の長さを通常の写真浴中で処理した。乾燥後、フィルムの両端を継ぎ合わせてループを作った。次いでこのループを通常の複写装置中に入れ、連続的に映画写真ポジフィルム上に 300 回焼付けた。1 回、100 回、200 回および 300 回焼付けた後、この材料を搔傷および塵の付着について調節した。比較として帯電防止層および保護層を有しない実施例 1 と同じハロゲン化銀乳剤と支持体を有する映画写真フィルムを作った。測定の結果を下表に示す。

	焼付 1回後	焼付 100回後		焼付 200回後		焼付 300回後	
		塵	搔傷	塵	搔傷	塵	搔傷
比較例	2	2	4	4	4	4	4
帯電防止層と保護層を有するフィルム	1	1	1	1-2	1-2	2	2

各実施例における上記数字は意味は次のとおりである。

搔傷:

- 0 : 搗傷なし
- 1 : 非常に少ない搔傷
- 2 : 写真の目的には妨げとならない程度の搔傷
- 3 : 写真の目的には妨げとなる程度の搔傷
- 4 : 写真材料が全く使用し得ない程度の搔傷

塵:

- 0 : 尘なし
- 1 : 非常に少量の塵
- 2 : 写真の目的には妨げとならない程度の塵
- 3 : 写真目的には妨げとなる程度の塵
- 4 : 写真材量としては全く使用し得ない程度の塵

実施例 9

下塗りしたセルローズトリアセテートフィルムの裏側に下記溶液から $4.8 \text{m}^3 / \text{l}$ の割合で帯電防止層を付与した。

苛性カリによって pH 7 に中和した分子量約 250000 のコポリ (ビニルメチルエーテル / マレイン酸) (5.0 : 5.0 モル%) の 10% 水溶液	50cc
メタノール	250cc
アセトン	600cc
アセトン中の実施例 1 のセルローズジ	100cc
アセテートの 5% 溶液	

70°C で 6 分間乾燥した後、それに実施例 3 と同じ保護層を付与した。次いで材料の前面を写真ゼラチノハロゲン化銀乳剤層で被覆した。得られ

11

た写真材料の表面抵抗の測定の結果は次のとおりであった。

処理前:	30% R H	$0.3 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.0024 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
処理後:	30% R H	$0.94 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.012 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

実施例 1 0

実施例 1 に記載した帯電防止層を、下記組成物を $4.25\text{m}^2 / \ell$ の割合で付与して形成させた層で置換して実施例 1 の方法を繰り返した。

コポリ(ビニルイソブチルエーテル/マレイン酸モノナトリウム塩)(50:50モル%)	3 g
水	50cc
メタノール	300cc
アセトン	590cc
セルローズジアセテート(実施例 1 と同じ)の 5% アセトン溶液	60cc
かく形成した写真材料の裏側の表面抵抗を、通常の写真材料で処理する前および後で、相対湿度 30% および 60% でそれぞれ調湿した後測定した。	20

処理前:	30% R H	$2.0 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.04 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

処理後:	30% R H	$5.1 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.15 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

実施例 1 1

下記組成物を $3.2\text{m}^2 / \ell$ の割合で付与して形成した層で実施例 1 の帯電防止層を置換して実施例 1 の方法を繰り返した。

コポリ(エチルアクリレート/メチルメタクリレート/メタクリル酸)(15:30:55重量%、固有粘度メタノール中で 0.72) からの 23.7% ラテックス

水	57.8cc
苛性ソーダを加えて pH を 7 にし、更に下記成分をこれに加えた。	

メタノール	250cc
アセトン	550cc

実施例 1 と同じセルローズジアセテートの 5% アセトン溶液	100cc
写真処理浴中で処理する前および後の写真材料の表面抵抗を、それぞれ 30% および 60% の相	40

12

対湿度で調湿して測定し、下記結果を得た。

処理前:	30% R H	$0.15 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.01 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
処理後:	30% R H	$3.5 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.07 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

実施例 1 2

下記被覆組成物を $3.2\text{m}^2 / \ell$ の割合で付与して形成した層で実施例 1 の帯電防止層を置換して実施例 1 の方法を繰り返した。

コポリ(ビニルアセテート/マレイン酸のモノナトリウム塩)(50:50モル%)	7 g
水	130cc
メタノール	370cc
アセトン	420cc
実施例 1 と同じセルローズジアセテートの 5% アセトン溶液	80cc
この写真材料の表面抵抗を前記実施例 1 と同様に測定して下記結果を得た。	

処理前:	30% R H	$0.5 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.009 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
処理後:	30% R H	$1.4 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.04 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

実施例 1 3	
下記被覆組成物を $3.6\text{m}^2 / \ell$ の割合で付与して形成した層で実施例 1 の帯電防止層を置換して実施例 1 の方法を繰り返した。	25

コポリ(ステレン/アクリル酸)(45:55モル%)	8 g
メタノール	100cc
水	100cc
これに苛性ソーダを加えて pH 7.2 とし、更に下記成分を加えた。	

メタノール	150cc
アセトン	550cc
実施例 1 と同じセルローズジアセテートの 5% アセトン溶液	100cc
この写真材料の表面抵抗を実施例 1 と同様に測定して下記結果を得た。	

処理前:	30% R H	$2.1 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.05 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
処理後:	30% R H	$4.3 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$
	60% R H	$0.09 \times 10^{10} \Omega / 10\text{cm}^2$

13

特許請求の範囲

1 支持体の裏側に連続的にA疎水性 α ・ β -エチレン系不飽和单量体と α ・ β -エチレン系不飽和モノマーまたはジカルボン酸またはその誘導体との部分中和した共重合体、およびB上記Aの共重合体と相溶性を有する疎水性重合体の混合物よりなる第一層を付与し、この層はセルローズエスチル支持体に影響を与える水混和性有機溶媒より付与し、次いでハロゲン化銀乳剤層の写真的性質をそこなわない非粘性疎水性重合体の保護層を付与

5

10

14

することを特徴とする支持体と少なくとも一つの感光性ハロゲン化銀乳剤層からなる写真材料の静電帶電する傾向を低下させる方法。

引用文献

特 公 昭40-22922
特 許 97273
カナダ特許局公報675054抄録